

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 10208725  
PUBLICATION DATE : 07-08-98

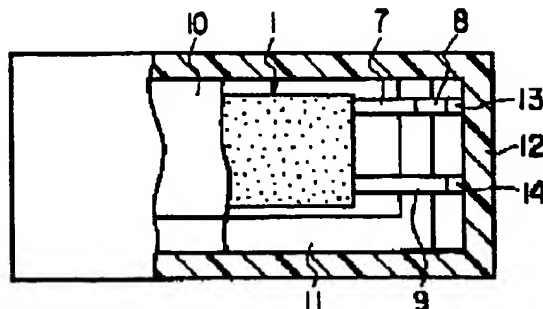
APPLICATION DATE : 21-01-97  
APPLICATION NUMBER : 09008804

APPLICANT : TOSHIBA BATTERY CO LTD;

INVENTOR : TSUCHIYA KENJI;

INT.CL. : H01M 2/22 H01M 10/40

TITLE : LITHIUM SECONDARY BATTERY



**ABSTRACT :** PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a lithium secondary battery of which space efficiency is improved while avoiding corrosion of the lead terminal connected to a positive pole lead made of aluminum.

**SOLUTION:** This lithium secondary battery comprises an electricity generating unit constituted of a positive electrode having a structure produced by forming a positive pole layer containing active material on a collector body, a negative electrode, and a lithium ion conductive electrolytic substance layer installed between the positive electrode and the negative electrode; a positive electrode lead 7 made of aluminum and connected to the collector body of the positive electrode; a lead terminal 8 containing at least one substance selected from nickel, stainless steel, and copper as a main component and connected to the positive electrode lead; and a laminate film 10 in which the electricity generating unit 1 is to be housed. The connection part of the positive electrode lead 7 and the lead terminal 8 is positioned in the sealed part 11 of the laminate film 10.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO

**This Page Blank (uspto)**

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-208725

(43) 公開日 平成10年(1998) 8月7日

(51) Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

F I

H 0 1 M 2/22  
10/40

H 0 1 M 2/22  
10/40

D  
Z

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平9-8804

(22) 出願日 平成9年(1997) 1月21日

(71) 出願人 000003539

東芝電池株式会社

東京都品川区南品川 3 丁目 4 番 10 号

(72) 発明者 土屋 謙二

東京都品川区南品川 3 丁目 4 番 10 号 東芝  
電池株式会社内

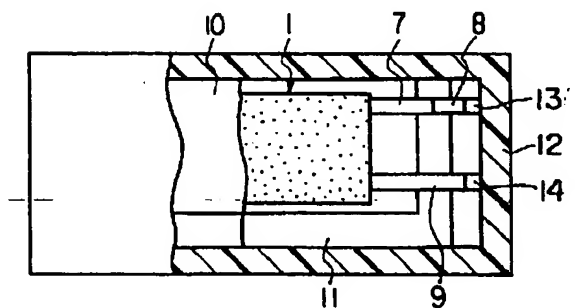
(74) 代理人 弁理士 鈴江 武彦 (外 6 名)

(54) 【発明の名称】 リチウム二次電池

(57) 【要約】

【課題】 アルミニウム製正極リードに接続されるリード端子の腐食を回避しつつ、スペース効率を向上することが可能なリチウム二次電池を提供する。

【解決手段】 活物質を含む正極層が集電体に担持された構造を有する正極と、負極と、前記正極と前記負極の間に配置されたリチウムイオン伝導性電解質層とを含む発電要素 1；前記正極の集電体に接続されたアルミニウム製の正極リード 7；前記正極リードに接続され、ニッケル、ステンレスおよび銅から選ばれる少なくとも 1 種を主成分とするリード端子 8；前記発電要素 1 が収納されるラミネートフィルム 10；を具備し、前記正極リード 7 と前記リード端子 8 の接続部は、前記ラミネートフィルム 10 の封止部 11 内に配置されることを特徴とするリチウム二次電池である。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 活物質を含む正極層が集電体に担持された構造を有する正極と、負極と、前記正極と前記負極の間に配置されたリチウムイオン伝導性電解質層とを含む発電要素；前記正極の集電体に接続されたアルミニウム製の正極リード；前記正極リードに接続され、ニッケル、ステンレスおよび銅から選ばれる少なくとも1種を主成分とするリード端子；前記発電要素が収納されるラミネートフィルム；を具備し、

前記正極リードと前記リード端子の接続部は、前記ラミネートフィルムの封止部内に配置されることを特徴とするリチウム二次電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、発電要素がラミネートフィルム内に収納された構造のリチウム二次電池に関する。

## 【0002】

【従来の技術】近年、電子機器の発達にともない、小型で軽量、かつエネルギー密度が高く、更に繰り返し充放電可能な二次電池の開発が要望されている。このような二次電池としては、リチウムまたはリチウム合金を活物質とする負極と、モリブデン、バナジウム、チタンあるいはニオブなどの酸化物、硫化物もしくはセレン化合物を活物質として含む懸濁液が塗布された集電体からなる正極と非水電解液を具備したリチウム二次電池が知られている。

【0003】しかしながら、リチウムまたはリチウム合金を活物質とする負極を備えた二次電池は、充放電サイクルを繰り返すと負極にリチウムのデンドライトが発生するため、充放電サイクル寿命が短いという問題点がある。

【0004】このようなことから、負極に、例えばコークス、黒鉛、炭素繊維、樹脂焼成体、熱分解気相炭素のようなリチウムイオンを吸蔵放出する炭素質材料を含む懸濁液が塗布された集電体を用いたリチウム二次電池が提案されている。前記二次電池は、デンドライト析出による負極特性の劣化を改善することができるため、電池寿命と安全性を向上することができる。

【0005】ところで、リチウム二次電池の一例であるポリマー電解質二次電池は、例えば、以下に説明する方法で製造される。まず、活物質、非水電解液及びこの電解液を保持するポリマーを含む正極層が正極リードを有する集電体に担持された構造の正極と、リチウムイオンを吸蔵放出し得る炭素質材料、非水電解液及びこの電解液を保持するポリマーを含む負極層が負極リードを有する集電体に担持された構造の負極と、前記正極と前記負極の間に配置され、非水電解液及びこの電解液を保持するポリマーを含む固体ポリマー電解質層とを備えた発電要素を作製する。得られた発電要素を二つ折りにしたラ

ミネートフィルムで被覆し、前記フィルムを熱圧着によって張り合わせるにより前記フィルム内に前記発電要素を前記正極リードの端部および前記負極リードの端部が前記フィルムの外側に延出した状態で密封する。このようにして得られたリチウム二次電池（素電池）は、例えば、単独か、もしくは組電池の形態で電池パック内に収納され、電子機器の電源として使用される。

【0006】前述した形態で電源として使用される場合には、前記リチウム二次電池の正極リードと負極リードは、前記電池パックのコネクターや、前記電池パック内に収納された回路（保護回路など）、もしくは他のリチウム二次電池のリードに接続されることとなる。ところで、コネクターや、回路の端子は、通常、ニッケルや、ステンレスから形成される。一方、前記正極リードは、充放電反応中の腐食を防止するためにアルミニウムから形成される。この正極リードと前述したコネクターや、回路とを直接接続するのは大変に難しい。このようなことから、前記正極リードをニッケルや、ステンレス、銅からなるリード端子と接続し、このリード端子をコネクターや、回路に接続したり、あるいはこのリード端子を絶縁被覆されたリード線と接続し、このリード線をコネクターや回路に接続することが行われている。この時、前記リード端子が前記ラミネートフィルム内に位置すると、前記リード端子が非水電解液により腐食されるため、前記正極リードを前記ラミネートフィルムの外側に延出させ、前記ラミネートフィルムの外側で前記正極リードと前記リード端子を接続する必要がある。

【0007】前記リチウム二次電池を電池パック内に収納した例を図3に示す。すなわち、箱形で、合成樹脂製の電池パック31内には、熱融着によってラミネートフィルム32内に密封された発電要素33が収納されている。アルミニウム製の正極リード34は、一端が前記発電要素33の正極集電体に接続され、他端が前記ラミネートフィルム32の外側に延出されている。例えば銅製の負極リード35は、一端が前記発電要素33の負極集電体に接続され、他端が前記ラミネートフィルム32の外側に延出されている。前記正極リード34は、ニッケルや、ステンレス、銅からなるリード端子36に接続されている。前記リード端子36は、前記電池パック31の正極端子37に接続されている。一方、前記負極リード35は、前記電池パック31の負極端子38に接続されている。

【0008】しかしながら、前述した構成の二次電池は、ラミネートフィルムの外側にこれとは別に正極リードとリード端子との接続部を必要とするため、スペース効率が劣るという問題点がある。

## 【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、アルミニウム製正極リードに接続されるリード端子の腐食を回避しつつ、スペース効率を向上することが可能なリチウム二

次電池を提供しようとするものである。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明に係るリチウム二次電池は、活物質を含む正極層が集電体に担持された構造を有する正極と、負極と、前記正極と前記負極の間に配置されたリチウムイオン伝導性電解質層とを含む発電要素；前記正極の集電体に接続されたアルミニウム製の正極リード；前記正極リードに接続され、ニッケル、ステンレスおよび銅から選ばれる少なくとも1種を主成分とするリード端子；前記発電要素が収納されるラミネートフィルム；を具備し、前記正極リードと前記リード端子の接続部は、前記ラミネートフィルムの封止部内に配置されることを特徴とするものである。

【0011】

【発明の実施の形態】本発明に係るリチウム二次電池の一例を図1及び図2を参照して詳細に説明する。図1に示すように、リチウム二次電池は、発電要素1を備える。このような発電要素1は、例えば図2に示すように、活物質を含む正極層2がアルミニウム製エキスパンドメタルのような網状集電体3の両面に担持された構造を有する正極を有する。また、前記発電要素1は、負極層4が銅製エキスパンドメタルのような網状集電体5の両面に担持された構造を有する負極も備えている。リチウムイオン伝導性電解質層としての固体ポリマー電解質層6は、前記正極と前記負極の間に介在されている。アルミニウム箔製の正極リード7は、前記集電体3に例えば超音波溶接や、抵抗溶接によって接続されている。リード端子8（例えばニッケルか、ステンレス、もしくは銅を主成分とする）は、例えば超音波溶接や、抵抗溶接によって前記正極リード7に接続されている。例えば銅箔からなる負極リード9は、前記集電体5に例えば超音波溶接や、抵抗溶接によって接続されている。このような発電要素1を二つ折りにしたラミネートフィルム10によって被覆し、前記正極リード7と前記リード端子8との接続部が前記ラミネートフィルム10の封止部（熱融着部）に位置するように、前記ラミネートフィルム10を熱融着により張り合わせることによって前記発電要素1を前記フィルム10内に収納する。このようなフィルム10に収納された発電要素1は、箱形で、合成樹脂製の電池パック12内に収納される。前記リード端子8は、前記電池パック12の正極端子13（例えば、ニッケルや、ステンレスから形成される）に接続される。前記電池パックの正極端子13と前記リード端子8との接続は、例えば、前記端子13に図示しないリード線（例えば、ニッケルリボンや、銅線を絶縁被覆したリード線からなる）を接続し、このリード線と前記リード端子8を半田付することによって行うことができる。また、前記負極リード9は、前記電池パック12の負極端子14（例えば、ニッケルや、ステンレスから形成される）に、例えば、前記端子14に図示しないリード線（例

ば、ニッケルリボンや、銅線を絶縁被覆したリード線からなる）を接続し、このリード線と前記負極リード9を半田付することによって接続される。

【0012】前記リチウム二次電池の正極、負極及び電解質層としては、例えば、以下に説明するものを用いることができる。

（正極）この正極は、正極活物質、非水電解液及びこの電解液を保持するポリマーを含む正極層が集電体に担持されたものから形成される。

【0013】前記正極活物質としては、種々の酸化物（例えば $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ などのリチウムマンガン複合酸化物、二酸化マンガ、例えば $\text{LiNiO}_2$ などのリチウム含有ニッケル酸化物、例えば $\text{LiCoO}_2$ などのリチウム含有コバルト酸化物、リチウム含有ニッケルコバルト酸化物、リチウムを含む非晶質五酸化バナジウムなど）や、カルコゲン化合物（例えば、二硫化チタン、二硫化モリブテンなど）等を挙げることができる。中でも、リチウムマンガン複合酸化物、リチウム含有コバルト酸化物、リチウム含有ニッケル酸化物を用いるのが好ましい。

【0014】前記非水電解液は、非水溶媒に電解質を溶解することにより調製される。前記非水溶媒としては、エチレンカーボネート（EC）、プロピレンカーボネート（PC）、ブチレンカーボネート（BC）、ジメチルカーボネート（DMC）、ジエチルカーボネート（DEC）、エチルメチルカーボネート（EMC）、γ-ブチロラクトン（γ-BL）、スルホラン、アセトニトリル、1,2-ジメトキシエタン、1,3-ジメトキシプロパン、ジメチルエーテル、テトラヒドロフラン（THF）、2-メチルテトラヒドロフラン等を挙げることができる。前記非水溶媒は、単独で使用する、2種以上混合して使用しても良い。

【0015】前記電解質としては、例えば、過塩素酸リチウム（ $\text{LiClO}_4$ ）、六フッ化リン酸リチウム（ $\text{LiPF}_6$ ）、ホウ四フッ化リチウム（ $\text{LiBF}_4$ ）、六フッ化砒素リチウム（ $\text{LiAsF}_6$ ）、トリフルオロメタンスルホン酸リチウム（ $\text{LiCF}_3\text{SO}_3$ ）、ビストリフルオロメチルスルホニルイミドリチウム〔 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_3)_2$ 〕等のリチウム塩を挙げることができる。

【0016】前記電解質の前記非水溶媒に対する溶解量は、 $0.2\text{mol/l}$ ～ $2\text{mol/l}$ とすることが望ましい。前記非水電解液を保持するポリマーとしては、例えば、ポリエチレンオキサライド誘導体、ポリプロピレンオキサライド誘導体、前記誘導体を含むポリマー、ビニリデンフロライド（VdF）とヘキサフルオロプロピレン（HFP）との共重合体等を用いることができる。前記HFPの共重合割合は、前記共重合体の合成方法にも依存するが、通常、最大で20重量%前後である。

【0017】前述した図2においては、前記正極の集電

体としてアルミニウム製エキスパンドメタルを使用した  
が、前記集電体には、例えばアルミニウム箔、アルミニ  
ウム製メッシュ、アルミニウム製パンチドメタル等を用  
いても良い。

【0018】前記正極は、導電性を向上する観点から導  
電性材料を含んでいてもよい。前記導電性材料として  
は、例えば、人造黒鉛、カーボンブラック（例えばアセ  
チレンブラックなど）、ニッケル粉末等を挙げることが  
できる。

【0019】（負極）この負極は、負極活物質、非水電  
解液及びこの電解液を保持するポリマーを含む負極層が  
集電体に担持されたものから形成される。

【0020】前記負極活物質としては、リチウムイオン  
を吸蔵放出する炭素質材料を挙げることができる。かか  
る炭素質材料としては、例えば、有機高分子化合物（例  
えば、フェノール樹脂、ポリアクリロニトリル、セルロ  
ース等）を焼成することにより得られるもの、コークス  
や、メソフェーズピッチを焼成することにより得られる  
もの、人造グラファイト、天然グラファイト等に代表さ  
れる炭素質材料を挙げることができる。中でも、500  
℃～3000℃の温度で、常圧または減圧下にて前記メ  
ソフェーズピッチを焼成して得られる炭素質材料を用い  
るのが好ましい。

【0021】前記非水電解液及び前記ポリマーとして  
は、前述した正極で説明したものと同様なものが用いら  
れる。前述した図2においては前記負極の集電体として  
は、銅製エキスパンドメタルを使用した、例えば銅  
箔、銅製メッシュ、銅製パンチドメタル等を用いても良  
い。

【0022】なお、前記負極シートは、人造グラファイト、  
天然グラファイト、カーボンブラック、アセチレン  
ブラック、ケッチェンブラック、ニッケル粉末、ポリフ  
ェニレン誘導体等の導電性材料、オレフィン系ポリマー  
や炭素繊維等のフィラーを含むことを許容する。

【0023】（固体ポリマー電解質層）この電解質層  
は、非水電解液及びこの電解液を保持するポリマーを含  
む。前記非水電解液及び前記ポリマーとしては、前述し  
た正極で説明したものと同様なものが用いられる。

【0024】前記電解質層は、強度を更に向上させる観  
点から、酸化珪素粉末のような無機フィラーを添加して  
も良い。前記正極、前記負極及び前記電解質層を備えた  
発電要素は、例えば、以下に説明する方法により作製す  
ることができる。すなわち、前記正極活物質、前記非水  
電解液を保持するポリマー、前記導電材料及びフタル酸  
ジブチル（DBP）のような可塑剤をアセトンなどの有  
機溶媒中で混合し、ペーストを調製し、成膜することに  
より正極シートを作製する。得られた正極シートを例え  
ば熱圧着により集電体に接着し、非水電解液未含浸の正  
極を作製する。一方、前記負極活物質、前記非水電解液  
を保持するポリマー及びフタル酸ジブチル（DBP）の

ような可塑剤をアセトンなどの有機溶媒中で混合し、ペ  
ーストを調製し、成膜することにより負極シート作製す  
る。得られた負極シートを例えば熱圧着により集電体に  
接着し、非水電解液未含浸の負極を作製する。また、前  
記非水電解液を保持するポリマー、前記無機フィラー及  
びフタル酸ジブチル（DBP）のような可塑剤をアセト  
ンなどの有機溶媒中で混合し、ペーストを調製し、成膜  
し、非水電解液未含浸の電解質層を作製する。このよう  
にして得られた非水電解液未含浸の正極と非水電解液未  
含浸の負極の間に、非水電解液未含浸の電解質層を介在  
し、例えば熱圧着により一体化する。得られた積層物か  
ら可塑剤を除去し、非水電解液を含浸させることにより  
前記発電要素を作製することができる。

【0025】前記リチウム二次電池に用いられるラミネ  
ートフィルムとしては、例えば、保護層としての機能を  
有する表面層（例えばポリエチレンテレフタレート（P  
ET）のような絶縁性樹脂からなる）と、前記表面層の  
片面に接着され、外部から水分が侵入するのを遮断する  
機能を有する中間層（例えばアルミニウムのような金属  
からなる）と、前記中間層に接着され、熱融着層として  
の内部層（例えば、アイオノマー樹脂のような熱融着性  
樹脂からなる）とから形成されたフィルムを挙げること  
ができる。

【0026】前記リチウム二次電池に用いられる電池パ  
ックは、例えば、機械的強度が高く、非水電解液によっ  
て腐食され難く、かつ難燃性を有する材料から形成す  
ることができる。このような材料としては、アクリロニ  
トリル-ブタジエンスチレン樹脂（ABS樹脂）、ポリ  
カーボネート樹脂等を挙げることができる。また、前記  
電池パックは、アルミニウムや、ステンレスなどの金属  
から形成しても良い。

【0027】以上説明したように本発明に係るリチウム  
二次電池は、活物質を含む正極層が集電体に担持された  
構造を有する正極と、負極と、前記正極と前記負極の  
間に配置されたリチウムイオン伝導性電解質層とを含む  
発電要素；前記正極の集電体に接続されたアルミニウム  
製の正極リード；前記正極リードに接続され、ニッケ  
ル、ステンレスおよび銅から選ばれる少なくとも1種を  
主成分とするリード端子；前記発電要素が収納される  
ラミネートフィルム；を具備し、前記正極リードと前記  
リード端子の接続部は、前記ラミネートフィルムの封止  
部内に配置されることを特徴とするものである。このよ  
うな二次電池によれば、ラミネートフィルム内に位置す  
る正極リードをアルミニウムからなるものにすることが  
できる。また、前記ラミネートフィルムの封止部内には  
非水電解液が侵入しないため、前記封止部内に位置す  
るリード端子の腐食を回避することができる。その結果、  
前記リチウム二次電池は、前記ラミネートフィルムの外  
側に設けられていた正極リードとリード端子を接続する  
ためのスペースを削除することができるため、スペース

効率を向上することができる。このため、前記二次電池の大きさを小さくすることができ、単位体積当りのエネルギー密度を向上することが可能になる。更に、前記正極リードと前記リード端子との接続部は、前記ラミネートフィルムにより被覆されているため、接続強度を向上することができる。

【0028】前述した図1に示すような前記ラミネートフィルム内に収納された発電要素が電池パック内に収納され、前記リード端子が前記電池パックの正極端子に接続され、負極リードが前記電池パックの負極端子に接続される構成のリチウム二次電池においては、前記正極リードと前記リード端子との接続部を前記ラミネートフィルムの融着部内に配置することによって、前記電池パック内に設けられていた前記接続部のためのスペースをなくすることができる。その結果、前記電池パック内に収納できる発電要素の容積を増加させることができたり、前記電池パック自体の大きさを小さくすることが可能になるため、前記電池パックの単位体積当りのエネルギー密度を向上させることができる。また、リチウム二次電池自体の大きさを小さくすることができるため、前記電池パックの製造に必要なスペースを低減することができ、生産性を向上することができる。

【0029】なお、前述した図1においては、リード端子と負極リードを電池パックの端子に直接接続する構成のリチウム二次電池に適用した例を説明したが、本願発明は、前記リード端子及び前記負極リードをPTC素子のような保護回路の端子に接続する構成のリチウム二次電池や、複数個の素電池を直列、並列に接続する（一方の素電池のリード端子と他方の素電池の負極リード及び

／または素電池のリード端子同士、負極リード同士を接続する）構成の組電池にも同様に適用することができる。

【0030】また、前述した図1においては、正極、電解質層及び負極がこの順序に積層された3層構造の発電要素を備えるリチウム二次電池に適用した例を説明したが、発電要素中の正負極の数は幾つでも良い。例えば、正極、電解質層、負極、電解質層、正極がこの順序に積層された5層構造の発電要素を備えるリチウム二次電池にも同様に適用することができる。また、前述の3層または5層構造の発電要素が複数に積層された発電要素を備えるリチウム二次電池にも同様に適用することができる。

【0031】

【発明の効果】以上詳述したように本発明によれば、正極リードに接続されるリード端子の腐食を防止しつつ、スペース効率を向上することが可能なリチウム二次電池を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係るリチウム二次電池の一例を示す部分切欠上面図。

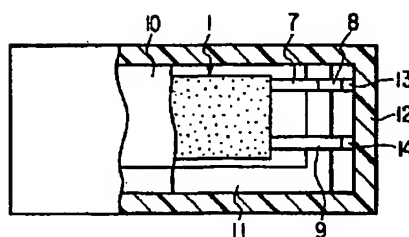
【図2】図1のリチウム二次電池の発電要素を示す断面図。

【図3】従来のリチウム二次電池の一例を示す部分切欠上面図。

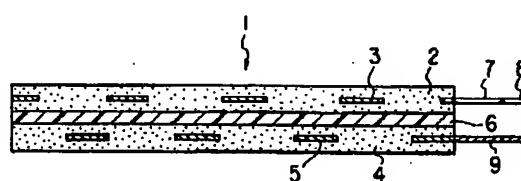
【符号の説明】

1…発電要素、7…正極リード、8…リード端子、10…ラミネートフィルム、11…封止部（融着部）。

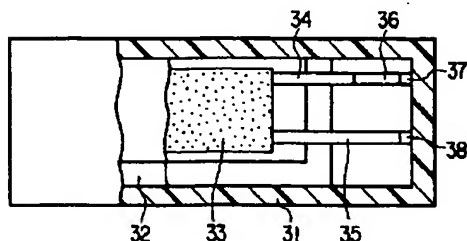
【図1】



【図2】



【図3】



8